

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

Federal Republic of Germany

Int. Class: C 09 K 3/34

German Patent Office

GERMAN (OS) 28 15 031

(Provisional Publication)

Serial No.: P 28 15 031.4

Filing Date: April 7, 1978

Laid-Open Date: Oct. 18, 1979

Applicant: HOECHST A.G., 6000 Frankfurt

Inventor: Prof. Dr. Hans Kelker, 6000 Frankfurt
Dr. Helmut Froster, 6240 Königstein
Dr. Gunter Baur, 7800 Freiburg

Title: **Usage of Dyes for a Fluorescence-Activated Reinforcement**
of the Optical Brightness

HOECHST A.G.

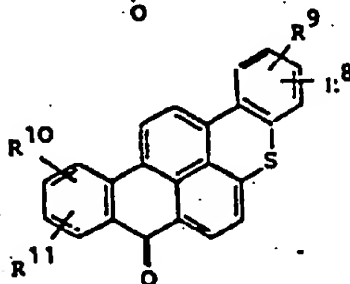
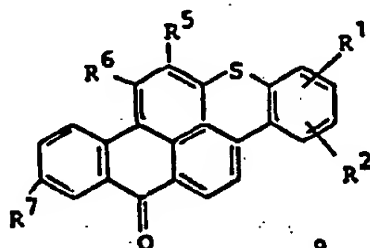
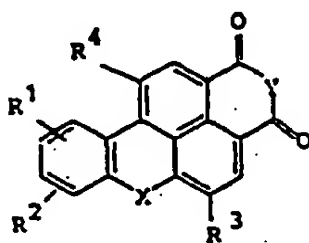
File No.: HOE 78/F 073

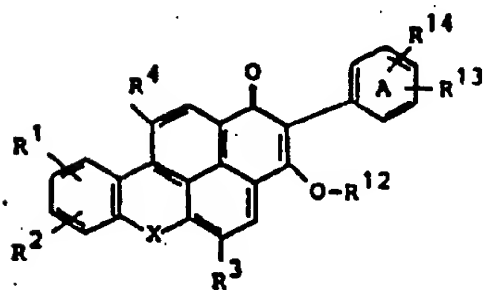
Date: April 6, 1978, Dr. KL/Fu

Usage of Dyes for a Fluorescence-Activated Reinforcement of the
Optical Brightness

PATENT CLAIM

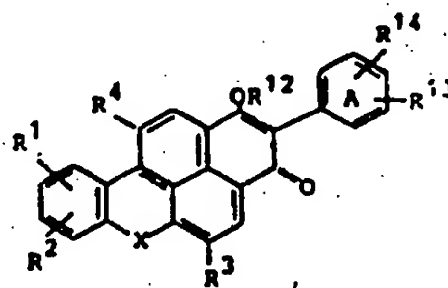
Usage of fluorescent dyes of the formulas:



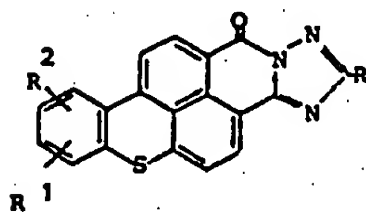


IVa

and

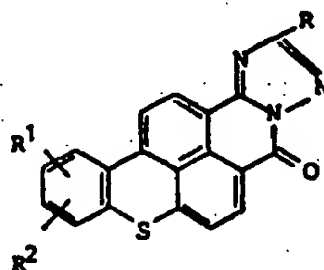


IVb



Va

and



Vb

where X means oxygen or sulfur,

Y means oxygen or a group of the formula =N-R, where R means hydrogen or an alkyl-, cycloalkyl- or a carbocyclic or heterocyclic aryl group,

R¹ and R² mean hydrogen, halogen, an alkyl-, alkoxy-, carbalkoxy-, acyloxy-, cyano- or an aryl group,

R³ means hydrogen or an alkoxy group,

R⁴ means hydrogen or jointly with R³, refers to an alkoxy group,

R⁵ means hydrogen, an alkyl-, alkoxy- or an aryl group,

R⁶ means hydrogen or an alkyl group,

R^7 means hydrogen, halogen or an alkoxy group,

R^8 , R^9 , R^{10} and R^{11} mean hydrogen, halogen, an alkyl-, alkoxy- or an aryl group,

R^{12} means an alkyl-, acyl- or an arylsulfonyl group, or may mean a direct bond to the free ortho-position of the phenyl-ring A, and

R^{13} and R^{14} mean hydrogen, halogen, an alkyl-, alkoxy-, alkylthio-, carbalkoxy-, acyl-, alkylsulfonyl-, acyloxy- or an aryl group, or where R^{13} and R^{14} form together an attached benzene ring,

whereby the said groups may in each case eventually also be substituted by non-fluorescence-extinguishing groups for a passive reinforcement of the brightness of liquid-crystal displays.

Usage of Dyes for a Fluorescence-Activated Reinforcement of the
Optical Brightness

The object of the invention is defined in the patent claim. The preferred embodiments of the invention shall be described in the following:

Preferably, the fluorescent dyes of the formulas I, IV and V are employed, where the groups R and R¹² refer to long-chained alkyl groups, whereby the solubility of the dyes in the plastic materials will be favorably affected. In particular, these long-chained alkyl groups contain up to 24, preferably up to 20 carbon atoms.

The other aliphatic groups mentioned in the formulas I to V, are preferably short-chained and have up to 6, preferably up to 4 carbon atoms. As aryl groups, the phenyl groups are preferred. As halogen atoms, chlorine and bromine are primarily to be considered. As a cycloalkyl group, the cyclohexyl group is preferred. As acyl groups, the benzoyl is primarily to be considered besides the lower alkanoyl groups.

As non-fluorescence-extinguishing substituents, the alkoxy groups are primarily employed, in particular the lower alkoxy groups, which in turn may also be substituted by alkoxy groups, as well as also alkyl- and phenyl groups and halogen atoms.

The dyes of the formulas I to V have been known and have e.g. been described in the German Patents 1 293 364, 1 293 939, 1 297 259, 1 569 735, 1 569 761, 1 794, 381, 2 008 491, 2 025 390 and 2 025 291 and also in the German Patent Application (OS) 2 607 966. The dyes not specifically described in these publications, may be prepared in an analogous manner.

The dyes of the formulas I to V are characterized by the fact, that the ratio of the absorption band width to the emission band width is large. Due to the good separation of the absorption bands and the fluorescence emission bands, these dyes exhibit only a minor self-absorption and show, therefore, a high fluorescence intensity. Advantageously, mixtures of these dyes with different absorption regions but approximately the same emission bands, may also be employed. Furthermore, these fluorescence dyes show excellent stability properties, in particular a high light-stability. Moreover, these dyes emit light in the greenish-yellow to the red range, i.e. in spectral ranges, which are particularly desirable for liquid-crystal displays.

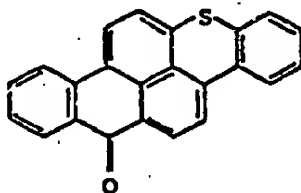
Based on these properties, the dyes of the formulas I to V are well suited for devices, where it is important, that the incident light is optimally utilized by means of a fluorescence radiation. The preferred devices have been described in the DE-OS 2 554 226, 2 613 891 and 2 616 669.

The dyes of the formulas I to V are preferably used in a concentration from 0.005 to 0.5%, in particular from 0.01 to 0.05%, based on the weight of the plastic material, in particular poly-(methyl methacrylate).

In the following examples, the indicated percentages are to refer to percent by weight.

EXAMPLE 1

In the molten poly-(methyl methacrylate), 0.03% of the dye of the following formula

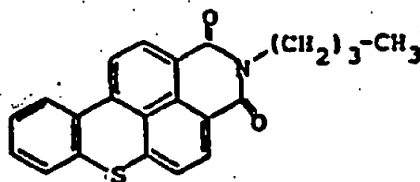


VI

were dissolved and uniformly distributed and further processed to produce fluorescent plates according to DE-OS 25 54 226.

EXAMPLE 2

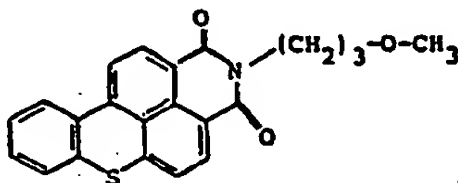
In analogy to example 1, fluorescent plates were prepared containing 0.01% of the dye of the formula VII.



VII

EXAMPLE 3

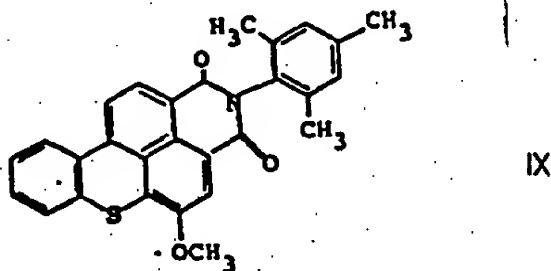
In analogy to example 1, fluorescent plates were prepared containing 0.015% of the dye of the formula VIII.



VIII

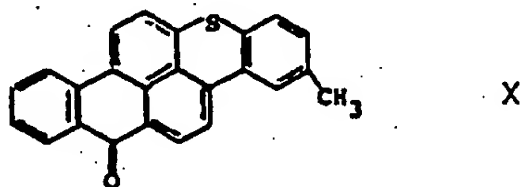
EXAMPLE 4

In analogy to example 1, fluorescent plates were prepared containing 0.02% of the dye of the formula IX.



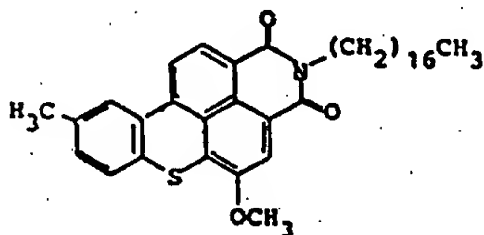
EXAMPLE 5

In analogy to example 1, fluorescent plates were prepared containing 0.02% of the dye of the formula X.



EXAMPLE 6

In analogy to example 1, fluorescent plates were prepared containing 0.1% of the dye of the formula XI.



XI

Translated by Hans L. Schlichting
3999-99th Lane N.E.
Circle Pines, MN 55014

Phone: 784-5350

Date: Oct. 14, 1993

51

Int. Cl. 2:

C 09 K 3/34

19 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES



PATENTAMT

DE 28 15 031 A 1

11

Offenlegungsschrift 28 15 031

21

Aktenzeichen:

P 28 15 031.4

22

Anmeldetag:

7. 4. 78

43

Offenlegungstag:

18. 10. 79

30

Unionspriorität:

32

33

31

54

Bezeichnung:

Verwendung von Farbstoffen zur fluoreszenz-aktivierten
Helligkeitsverstärkung

71

Anmelder:

Hoechst AG, 6000 Frankfurt

72

Erfinder:

Kelker, Hans, Prof. Dipl.-Chem. Dr., 6000 Frankfurt;
Tröster, Helmut, Dipl.-Chem. Dr., 6240 Königstein;
Baur, Günter, Dipl.-Phys. Dr., 7800 Freiburg

DE 28 15 031 A 1

Aktenzeichen:

HOE 78/F 073

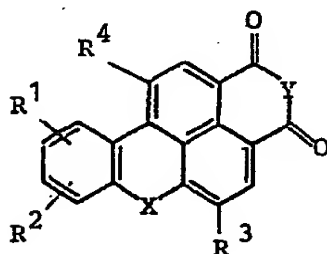
Datum: 6. April 1978

Dr. KL/Fu

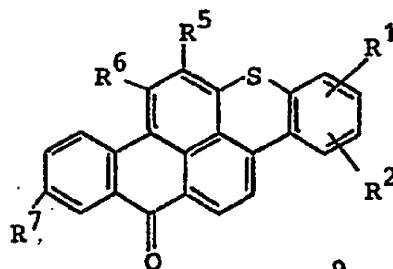
Verwendung von Farbstoffen zur fluoreszenz-aktivierten
Helligkeitsverstärkung

Patentanspruch

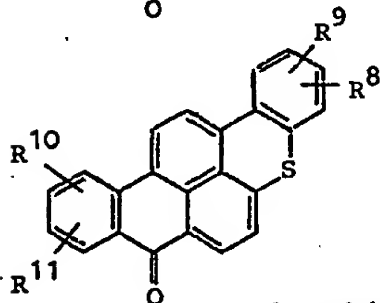
Verwendung von fluoreszierenden Farbstoffen der Formeln



I



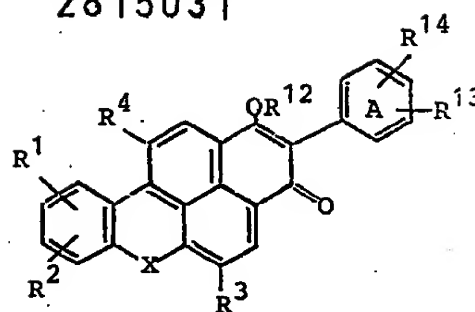
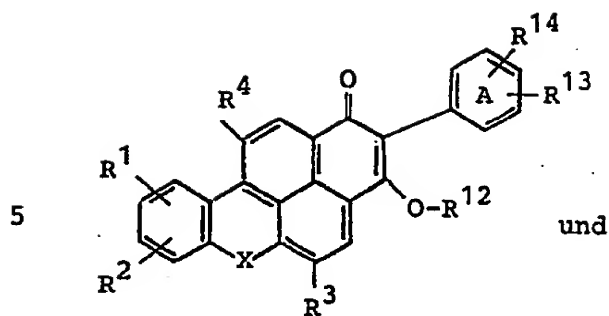
II



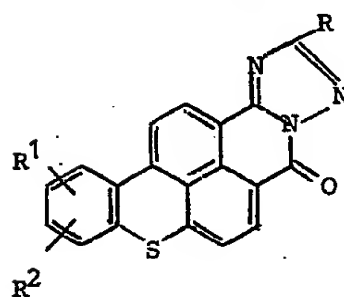
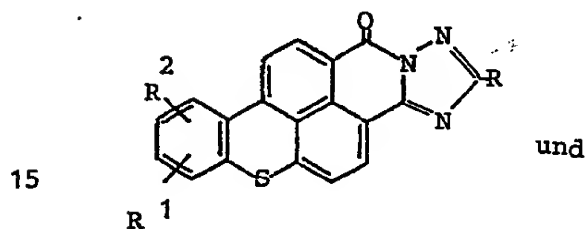
III

909842/0185

2815031



10



20 in denen X für Sauerstoff oder Schwefel,
 Y für Sauerstoff oder eine Gruppe der Formel = N-R steht,
 in der R für Wasserstoff oder einen Alkyl-, Cycloalkyl oder
 einen carbocyclischen oder heterocyclischen Arylrest steht,
 R¹ und R² für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Carb-
 25 alkoxy, Acyloxy, Cyan oder Aryl stehen,

R³ für Wasserstoff oder Alkoxy,
 R⁴ für Wasserstoff oder gemeinsam mit R³ für Alkoxy steht,
 R⁵ für Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
 20 R⁶ für Wasserstoff oder Alkyl steht,
 R⁷ für Wasserstoff, Halogen oder Alkoxy steht,
 R⁸, R⁹, R¹⁰ und R¹¹ für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy
 35 oder Aryl stehen,

909842/0185

2815031

R^{12} für Alkyl, Acyl oder Arylsulfonyl steht oder eine direkte Bindung zu einer freien ortho-Stellung des Phenylrings A darstellt, und

- 5 R^{13} und R^{14} für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Carbalkoxy, Acyl, Alkylsulfonyl, Acyloxy oder Aryl stehen oder R^{13} und R^{14} zusammen einen annellierten Benzolring darstellen, wobei die genannten Reste jeweils gegebenenfalls durch
- 10 nicht-fluoreszenzlöschende Reste substituiert sein können, zur passiven Helligkeitsverstärkung von Flüssigkristallanzeigen.

909842/0185

2815031

HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT HOE 78/ F 073

Verwendung von Farbstoffen zur fluoreszenz-aktivierten
Helligkeitsverstärkung

- 5 Der Gegenstand der Erfindung ist im Patentanspruch definiert.
Bevorzugte Ausgestaltungen der Erfindung werden im folgenden
wiedergegeben:

Bevorzugt werden fluoreszierende Farbstoffe der Formeln I,
10 IV und V eingesetzt, in denen die Reste R und R¹² lang-
kettige Alkylreste darstellen, da hierdurch die Löslichkeit
der Farbstoffe in Kunststoffen günstig beeinflußt wird.
Insbesondere enthalten solche langkettigen Alkylreste bis
zu 24, vor allem bis zu 20 Kohlenstoffatome.

15

Die übrigen in den Formeln I bis V genannten aliphatischen
Reste sind bevorzugt kurzkettig und weisen bis zu 6, insbe-
sondere bis zu 4 Kohlenstoffatome auf. Als Arylreste sind
Phenylreste bevorzugt. Als Halogenatome kommen in erster
20 Linie Chlor- und Bromatome in Betracht. Als Cycloalkylrest
ist Cyclohexyl bevorzugt. Als Acylreste kommen in erster
Linie neben niederen Alkanoylresten Benzoylreste in Betracht.

Als nicht-fluoreszenzlöschende Substituenten kommen in erster
Linie Alkoxyreste, insbesondere niedere Alkoxygruppen in

809842/0185

Frage, die ihrerseits wieder durch Alkoxyreste substituiert sein können, sowie Alkyl- und Phenylreste und Halogenatome.

- 5 Farbstoffe der Formeln I bis V sind bekannt, beispielsweise aus den Deutschen Patentschriften 1 293 364, 1 293 939, 1 297 259, 1 569 735, 1 569 761, 1 794 381, 2 008 491, 2 025 390 und 2 025 291 sowie aus der Deutschen Offenlegungsschrift 2 607 966. Dort nicht beschriebene Farbstoffe
10 können in analoger Weise hergestellt werden.

- Die Farbstoffe der Formeln I bis V zeichnen sich dadurch aus, daß das Verhältnis der Absorptionsbandbreite zur Emissionsbandbreite groß ist. Durch die gute Trennung von Absorptions-
15 und Fluoreszenzemissionsbanden weisen diese Farbstoffe nur eine geringe Selbstabsorption auf und zeigen dadurch eine hohe Fluoreszenzintensität. Vorteilhaft können auch Mischungen solcher Farbstoffe mit unterschiedlichen Absorptionsgebieten, aber annähernd gleichen Emissionsbanden eingesetzt werden.
20 Darüberhinaus zeigen diese Fluoreszenzfarbstoffe vorzügliche Echtheitseigenschaften, insbesondere eine hohe Lichtechtheit. Weiterhin emittieren diese Farbstoffe im grünstichig-gelben bis roten Bereich, d.h. also in Spektralbereichen, die für Flüssigkristallanzeigen besonders erwünscht sind.

- 25 Aufgrund dieser Eigenschaften eignen sich die Farbstoffe der Formeln I bis V für Vorrichtungen, bei denen es darauf ankommt, das einfallende Licht optimal mit Hilfe der Fluoreszenzstrahlung auszunutzen. Bevorzugt sind Vorrichtungen, wie
30 sie in den Deutschen Offenlegungsschriften 2 554 226, 2 613 891 und 2 616 669 beschrieben sind.

- Die Farbstoffe der Formel I bis V werden vorzugsweise in einer Konzentration von 0,005 bis 0,5%, insbesondere 0,01
35 bis 0,05%, bezogen auf das Gewicht des Kunststoffs, insbesondere Polymethylmethacrylat, eingesetzt.

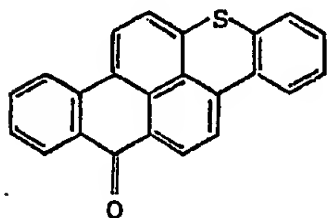
In den folgenden Beispielen beziehen sich die Prozentangaben auf das Gewicht.

2815031

Beispiel 1

In geschmolzenem Polymethylmethacrylat werden 0,03% des Farbstoffs der Formel

5



10

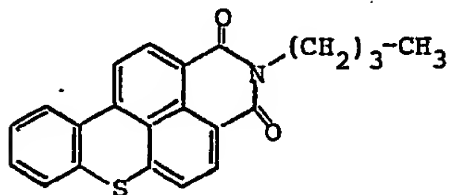
VI

15 gelöst, gleichmäßig verteilt und zu Fluoreszenzplatten gemäß DE-OS 25 54 226 verarbeitet.

Beispiel 2

20 Analog Beispiel 1 werden Fluoreszenzplatten hergestellt, die 0,01% des Farbstoffs der Formel

25



VII

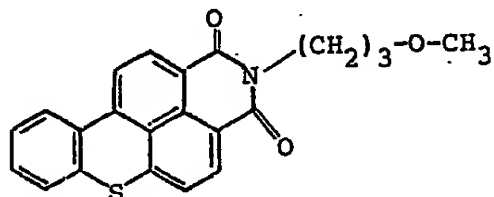
30 enthalten.

2815031

Beispiel 3

Analog Beispiel 1 werden Fluoreszenzplatten hergestellt,
die 0,015% des Farbstoffs der Formel

5



VIII

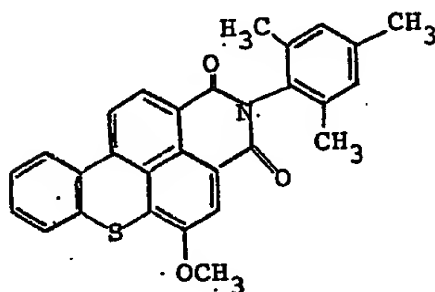
10

enthalten.

15 Beispiel 4

Analog Beispiel 1 werden Fluoreszenzplatten mit einem Gehalt
von 0,02% des Farbstoffs der Formel

20



IX

25

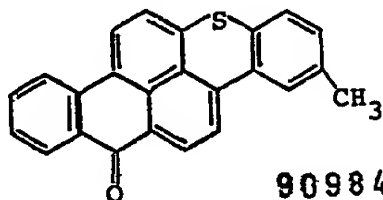
hergestellt.

30

Beispiel 5

Analog Beispiel 1 werden Fluoreszenzplatten mit einem Ge-
halt von 0,02% des Farbstoffs der Formel

35



X

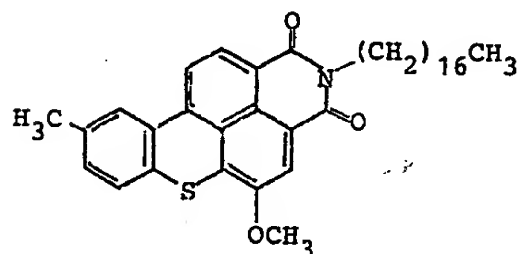
909842/0185

2815031

hergestellt.

Beispiel 6

Analog Beispiel 1 werden Fluoreszenzplatten hergestellt,
die 0,1 % des Farbstoffs der Formel



XI

enthalten.